

⑫ 公開特許公報(A)

平1-200914

⑬ Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成1年(1989)8月14日

B 29 B 15/12  
C 08 J 5/24

6804-4F  
6363-4F

審査請求 未請求 請求項の数 10 (全10頁)

⑮ 発明の名称 樹脂の含浸法

⑯ 特 願 昭63-255388

⑰ 出 願 昭63(1988)10月11日

優先権主張 ⑱ 昭62(1987)10月20日 ⑲ 日本(JP) ⑳ 特願 昭62-265059

㉑ 発 明 者 服 部 敏 裕 愛知県名古屋市東区砂田橋4-1-60 三菱レイヨン株式会社内  
㉒ 発 明 者 後 藤 孟 愛知県名古屋市東区砂田橋4-1-60 三菱レイヨン株式会社内  
㉓ 発 明 者 滝 口 郁 朗 愛知県豊橋市牛川通4-1-2 三菱レイヨン株式会社内  
㉔ 出 願 人 三菱レイヨン株式会社 東京都中央区京橋2丁目3番19号  
㉕ 代 理 人 弁理士 吉沢 敏夫

明 細 書

1. 発明の名称

樹脂の含浸法

2. 特許請求の範囲

1. 樹脂層上にシート状物を重ね次いで該樹脂をシート状物中に含浸せしめるロール含浸法に於て、特定の凹凸パターンを有するプレスロールを用いることを特徴とする樹脂の含浸法。
2. 特定の凹凸パターンが直線、曲線又はその両者によつて囲まれた凸部領域を有する凹凸パターンであることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
3. 凸部領域の面積がプレスロール表面積の20～90%である凹凸プレスロールを用いることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
4. 1本以上の凹凸パターンプレスロールを、凹凸パターンプレスロールのみ、もしくは従来のプレスロールと併用して含浸を行うことを特徴とする請求項1記載の含浸法。

5. シート状物がトウ状物の引き揃えシートであることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
6. シート状物が繊維物であることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
7. シート状物が炭素繊維から成ることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
8. 樹脂の含浸に際し炭素繊維から成るシート状物に通電発熱せしめることにより樹脂の流動化とシート状物の昇温を促進せしめることを特徴とする請求項7記載の含浸法。
9. 請求項1記載の含浸法で得られたプリプレグ。
10. 請求項9記載のプリプレグから得られた積層体。

3. 発明の詳細な説明

<産業上の利用分野>

本発明は、繊維強化プラスチックの製造、特にシート状の強化繊維とマトリックスである樹脂とから成る平板状材料の製造に於ける新規な樹脂含浸法に係るものである。

<従来の技術及び発明が解決しようとする課題>

繊維強化プラスチック(以下FRP)の1つの形態、或はFRPを得るための中間材料の形態として強化繊維のシート状物に樹脂を含浸せしめた構造がある。

上記の中間材料は、一般にプリプレグとして知られているもので、本発明は主として、このプリプレグの製造に於ける樹脂の含浸方法に係るものである。

この分野に於ける樹脂の含浸は、樹脂が熱硬化性或は可塑性であるに拘らず共通する要素は、溶剤又は加熱等の手段によつて樹脂の流動化を行い繊維層内に樹脂を含浸せしめることであり、現在最も多く採用されている代表的な樹脂含浸法は加熱により樹脂の流動化を行うホットメルト法である。

具体的には、第8図に示す如く剥離紙(24)上に樹脂を均一に塗布した樹脂フィルム(25)に強化繊維から成るシート状物(26)を積層し、加熱ロール(27)及びプレスロール(28)によりシート

である。

このため従来のロール含浸法に於ては粘度を出来るだけ下げること、プレスロールを用いて徐々に繊維層に樹脂を含浸せしめることが基本とされてきた。したがつてプリプレグの生産速度はシート状物の繊維層内への樹脂の含浸速度で律速され従来のロール含浸法は問題があつた。

さらに従来のロール含浸法では低粘度状態を長時間維持することが必要であり、特に熱硬化性樹脂をマトリックスとするプリプレグの製造に於ては硬化反応の進行に留意する必要がある樹脂組成を制約する要因の1つであつた。

本発明は、前述の如き従来のロール含浸技術の基本的欠点、即ち繊維層中への樹脂の含浸速度が低く生産速度を高めようとする時樹脂の絞りだしを生じ高い生産速度が得られないこと、及び長時間加熱に起因する諸問題を解決しようとするロール含浸法の改良技術に係る発明である。

<課題を解決するための手段>

状物中に樹脂が含まれたプリプレグ(29)を得ようとするもので、この様な含浸法を採用したプリプレグ製造設備は例えばカリフォルニアグラフィットマシン Inc. (カナダ)或はカラシエ A O (スイス)などから発表されている。

これらの含浸法はプレスロール含浸法と呼ばれるが、この含浸法の基本的問題点は生産性の向上即ちシート状物の速度を上げようとする時プレスロールによる樹脂の絞り出し現象が発生することにある。すなわち第8図に於て加熱ロール(27)により流動化された樹脂はプレスロール(28)で加圧することによりシート状物(26)の繊維層に含浸するよりもむしろロール前方(図中ロール(27)(28)のニップ点よりも左方)に絞り出される現象が生ずる。

この現象は被含浸物であるシート状物(26)を構成する繊維の線径が小さい程、繊維の方向がシート状物の方向と一致した構造である程、繊維層の厚さが厚い程或は樹脂粘度が高い程顕著

本発明の要旨は、樹脂層上にシート状物を重ね次いで該樹脂をシート状物中に含浸せしめるロール含浸法に於て、特定の凹凸パターンを有するプレスロールを用いる樹脂の含浸法にある。

本発明を図面によつて説明する。

第1図は本発明の特定の凹凸パターンを有するプレスロールを用いる樹脂の含浸法を示す模式図である。

剥離紙上に塗布された樹脂フィルム(1)上に強化繊維から成るシート状物(2)が積層され、さらにその上部に剥離フィルム(3)で被覆された積層体は、加熱ドラム(4)表面で加熱され樹脂が流動化された時点でプレスロール(5-1)によりシート状物(2)の繊維層に樹脂が含浸される。従来技術においては、プレスロール(5-1)表面は平滑な所謂平滑なプレスロールであるが本発明に於ては表面に特定の凹凸パターンを有するロールであることに特徴がある。

この凹凸のあるプレスロールは(5-1)或は(5-2)、(5-3)・・・と複数本の併用さらに

は平滑なプレスロールと併用して用いることも出来る。本発明の基本的要件である凹凸のあるプレスロールについて以下に説明する。

本発明に於て用いられる凹凸のあるプレスロール表面の特定の凹凸パターンについて述べる。

本発明に至る過程に於て本発明者等は生産性の向上は繊維層の厚さ方向の含浸速度の向上にあるとの考え方に立つて、絞り出しを生ぜずかつ、繊維層の厚さ方向に樹脂を導くことの出来る凹凸パターンについて検討を行つた。

その結果、最も好ましい凹凸パターンは直線、曲線或はその両者によつて囲まれた凸部の領域を持つパターンであるとの結果を得るに至つた。この様な凹凸パターンを第2図以下に例示するが本発明のパターンはこれらの例示のみに限定されるものではない。

第2図は直線によつて囲まれた凸部の領域を持つ凹凸パターンの代表例の平面図(第2-a図)及び第2-a図におけるA-A'断面の断面図(第2-b図)である。また図中矢印は、

の含浸効果が期待出来ない理由はこの点にある。この現象の理由を以下に説明する。第5図に於てシート状物(7)の下方に置かれた樹脂(8)は凹凸プレスロールの凸部(9-1)で加圧されることにより一部はシート状物を構成する繊維層内へ、剰余の樹脂は前方(図中右方)に絞り出される。しかし、本発明の如く凸部が不連続である場合凹部の体積を適切に設定することにより凹部(9-2)でその流れを止めると共に圧力の存在しない凸部の方向即ち繊維層の厚さ方向に樹脂の流れ方向を転換せしめることが出来る。即ち凸部で剰余の樹脂により発生する圧力を繊維層の厚さ方向に含浸せしめる圧力に転換せしめることが出来る。

したがつて、凹凸パターンの大きさは凹凸のあるプレスロールの直径、ロールの材質、シート状物の圧縮特性等によつて決められるべきであるが例として示せば直径100mm以上のプレスロールに於てロールの材質としてゴムを使用する時には凸領域のロール周方向の最大長は8

凹凸のあるプレスロールの周方向に一致する。この例示パターンに於ては直線によつて囲まれた変形の凸部の領域を有するものである。

第3図は、曲線によつて囲まれた凸部の領域が楕円形状を有する凹凸パターンの平面図である。

第4図は、凸部が直線で囲まれた他の1例の平面図であり、屈曲した凸部を有する例示であり図中矢印は何れも凹凸のあるプレスロールの周方向と一致する。

特開昭57-195619号(特公昭59-10295号)公報に記載のプリプレグシートの製造法に於て、周方向に連続溝を有する筋ロールを用いてランダムマツト状物に樹脂を含浸させる際に気泡を除去する方法が提案されているが、本発明に於て用いられる凹凸パターンは第2~4図に於て例示した如く、凹凸のあるプレスロールの凸部は周方向に不連続であることに最も大きな違いがあり、該公報の方法は気泡の除去即ち絞りだしは出来ても繊維層への樹脂

~10mm以下であることが好ましい。

上記に説明した様な比較的細分化された凸部領域を持つ凹凸パターンに対し直線状或は曲線状凸部を平行に並べただけのパターン、例えばプレスロールの回転軸に添つた溝を有する凹凸のあるプレスロールを使用するとき理論的には第5図に示す樹脂流れの方向転換が生ずるが特にシート状物が一方方向に引揃えられたトウシートである時樹脂の流れに伴う繊維配向の乱れが生ずること、樹脂と置換される空気の流路が閉じられることなどの理由により含浸用凹凸プレスロールとして好ましいパターンではない。

但し、後述する様に第2図以降に示した本発明のパターンを使用して繊維層に樹脂を含浸した後、主としてプレスロールの周方向に連続した凹部を有する凹凸のあるプレスロール(例えば周方向に添つて定ピッチの溝を有する筋ロール)を用いることを制約するものではない。

次に凹凸のあるプレスロールの全周面積に占める凸部の面積の割合(以下凸部面積比)は、

被含浸物であるシート状物の厚さ、含浸されたシート状物体積に占める樹脂体積の比率（以下樹脂含量 %）、樹脂粘度等により決定されるが最も重要な因子は樹脂含量である。一例として、シート状物が炭素繊維トウを引揃えて得たもので、目付が $150\text{ g/m}^2$ であつて、含浸すべき樹脂が $10\text{ ps}(100^\circ\text{C})$ のエポキシ樹脂である場合の樹脂含量と凸部の最適面積比を実験により求めると第6図に示す如く樹脂含量の増大に伴つて凸部面積比を下げる必要がある。凸部面積比が大きすぎる場合には、凹凸のあるプレスロールによる樹脂の絞り出しを生じ、小さすぎる場合にはシート状物の厚さ方向への樹脂の流れを促進せしめる圧力が発生せず前記に説明した如き本発明の凹凸のあるプレスロールの作用効果が期待できない。FRPの製造における樹脂含量はおよそ20~70%であり、この分野に於ける凹凸のあるプレスロールの好ましい凸部面積比は20~90%、好ましくは30~80%である。

凹凸のあるプレスロールの使用法について説明する。

第1図に於て、プレスロールが本発明の凹凸のあるプレスロール1本の状態（プレスロール5-2、5-3…及び5-4が存在しない状態）では含浸されるべき樹脂は繊維層内に局部的な含浸が行われており必ずしも全ての部分においてシート状物が含浸状態にはないブリアレグが得られる。この含浸状態はシート状物の長手方向、巾方向に空気の通過可能な流路が存在しており脱気不要のブリアレグの構造として好ましいものである。一般に、特に熱硬化ブリアレグを使用して積層体を製作する時、積層間に介在する空気を除去するために積層ごと或は数積層ごとに真空パックにより脱気を行う必要がある。しかし積層されるブリアレグに連続した空気流路が存在する時には脱気を省略出来る可能性があることが指摘されている。（"Advanced Materials Technology" 1986 edited by Society for the Advancement of Material

また凹部の深さは凸部によつて、シート状物の厚さ方向に貫通して流された樹脂を捕捉しうる体積を持つことが必要であり、一例を示せば凹部の断面が第2図bに示された三角形である場合、その深さは凹部巾の0.6倍以上であればよい。

以上に詳述した本発明の凹凸のあるプレスロールはロール表面に直接特定のパターンを有する状態として説明したが、同様なパターンを有するパターンベルトとして用いることも出来る。この時には樹脂流れの方向転換をより確実に行うことが出来る特徴がある。

また凹凸のあるプレスロールのプレス圧力は実験結果によると凹凸のあるプレスロールの材質、樹脂粘度、繊維層の厚さ及び樹脂含量等により最適値が異なるが、線圧としておよそ0.5~8.0 kg/cm、好ましくは5~4.0 kg/cm程度が適当である。

以上に本発明の凹凸のあるプレスロールの樹脂含浸作用について説明したが、次にこの様な

and Press Eng. pages 480~490)

凹凸のあるプレスロールは、第1図に示される様に、複数本の凹凸のあるプレスロール或は平滑なプレスロールを含む従来のプレスロールと併用した含浸法として利用される。

例えば第1図に於てプレスロール(5-1)を本発明の凹凸のあるプレスロール、プレスロール(5-2)をロールの周方向に連続した溝を有する筋ロール、プレスロール(5-3)を平滑なロールとする組合せが代表例であり（プレスロール5-4は使用しない）、この様な組合せに於ては凹凸のあるプレスロール(5-1)により樹脂はシート状物中に局部的に含浸が行われ、次いで筋ロール(5-2)によつて樹脂はシート状物長手方向に移動されると同時に樹脂と空気の置換が行われシート状物全体の樹脂による濡れが実現される。この時樹脂は第1のプレスロールである凹凸のあるプレスロールにより既にシート状物の繊維層内に移動しているため第二のプレスロールが筋ロールであつても従来のロ

一含浸法に見られる樹脂の絞り出しはシート  
の移動速度が高い場合でも発生せず高速度の樹  
脂含浸が可能となる。この様に本発明に於て本  
発明の凹凸のあるプレスロールは単独でも或は  
他のプレスロールと組合せても使用することが  
可能であるが、何れの場合に於ても含浸を目的  
としてプレスロールを使用する時には含浸の最  
初に凹凸のあるプレスロールが用いられること  
が必要である。

このことは、樹脂がシート状物の長手方向に  
添つて絞り出される前に先ず繊維層の厚さ方向  
に樹脂を移動せしめ、その後シート状物の長手  
方向に添つて繊維層内に於て樹脂を移動せしめ  
るためである。したがつて、本発明に於て樹脂  
の含浸に本質的に寄与しないプレスロールが本  
発明の凹凸のあるプレスロールの前に存在する  
ことを妨げるものではない。また本発明の凹凸  
のあるプレスロールを複数本組合せて使用する  
ことも出来る。

次に本発明の含浸法に用いられるマトリツク

との樹脂の流れ速度が最もかい離しており従来  
のロール含浸法では最も樹脂の絞り出しを生じ  
やすくまた繊維の配向を乱しやすい。しかし本  
発明の含浸法によれば絞り出しと繊維配向の乱  
れを同時に解決しうるものである。

また本発明の含浸法は前述の如く局部的にシ  
ート状物を拘束しつつ含浸を行うためシート状  
物が織物或は無配向の繊維の集合体である不織  
布状のものにも適応が可能である。

この様なシート状物は炭素繊維、ガラス繊維、  
芳香族ポリアミド、ポリエステル繊維、ポリエ  
チレン繊維等であり特にその材料の種類を限定  
するものではないが単繊維の繊維直径が小さく  
かつ高弾性体である炭素繊維トウから成るシ  
ート状物の場合シート状物の厚さ方向と繊維の配  
向方向の樹脂流れ速度のかい離が特に大きく本  
発明の含浸法が有効である。さらにシート状物  
を構成する繊維が炭素繊維又は炭素繊維を含む  
材料である時には、繊維の通電による発熱を利用  
することにより本発明の含浸効果をさらに向

ス用樹脂について説明する。本発明の趣旨は、  
繊維層内へ流動性のある樹脂を含浸するもので  
あるので特に樹脂を限定するものでなく、加熱  
によつて流動性を示す樹脂、例えば不飽和ポリ  
エステル樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、  
ユリア樹脂、メラミン樹脂、ジアリルフタレ  
ート樹脂、シリコン樹脂等の熱硬化樹脂、ナイロ  
ン、ポリスルホン、ポリエーテルイミド、ポリ  
エーテル・エーテルケトン、ポリ塩化ビニル、  
ポリブチレンテラフタレート、ポリエチレンテ  
ラフタレート、ポリエチレン等の熱可塑性樹脂  
等である。

次に本発明の含浸法が利用されるシート状物  
について説明する。

シート状物として最も多く使用される形態は  
トウ状物を引揃えシート状とした所謂一方向シ  
ートであり、この一方向シート含浸に於て本発  
明の含浸法の特徴が特に発揮される。

即ち、一方向シート状物に於ては繊維層の厚  
さ方向と繊維の長手方向（シートの長手方向）

上せしめることができる。

従来の技術、即ちシート状物の下におかれた  
樹脂を下部より加熱して樹脂の流動化を計る方  
法に於ては繊維層での繊維による吸熱による樹  
脂温度の低下即ち樹脂粘度の増加が生じ特に厚  
手の繊維層を有するシート状物の含浸に問題が  
あつた。

これに対し繊維を直接発熱せしめる通電加熱  
による樹脂含浸法では繊維層全体が所定の温度  
に設定出来るため繊維層内での温度勾配がなく  
したがつて含浸に伴う樹脂の粘度増加は生じな  
い。

したがつて凹凸のあるプレスロールを使用す  
る本発明の含浸法と繊維層の通電加熱法を組合  
せることにより繊維層の厚さが厚いシート状物  
含浸に於ても樹脂の高速含浸が可能である。

また、繊維を直接加熱するため熱ロスが小さ  
く、急速に加熱することが可能であり高速含浸  
の補助手段として好ましい加熱方式である。

通電により発熱するシート材料としては現在

のところ炭素繊維があり実験結果によると通電方向に存在する繊維の30(重量)％以上好ましくは60(重量)％以上が炭素繊維である時、シート状物の温度制御が容易でありシート状物として好ましい構成である。

シート状物が炭素繊維から成る場合、交流または直流の電流を通電することにより炭素繊維は室温～500℃程度まで加熱することが可能であり生産速度或は樹脂条件により温度を適宜調整し樹脂の含浸性をコントロールする。尚、樹脂を含浸させるに際して炭素繊維を通電加熱すると同時に樹脂を従来の方法で加熱し樹脂粘度の低下を計ることは何ら問題ではない。

この様な通電加熱を併用する樹脂含浸法を模式図として第7図に示す。

この図では、供給されたシート状炭素繊維(11)はロール電極(1)を介することによりフィルム電極(10)との間で電源10により印加され昇温した後、剥離紙上に樹脂を塗布した樹脂フィルム(12)と重ね合わされ張力発生ロール(15)上

ブレッグを十分に冷却することが可能となる。このためには電極との接触長は、300mm以上であることが好ましい。但し、この値は帯状電極の構成により定まるものであり、特に限定するものではない。

なお、炭素繊維に通電・加熱しながら樹脂含浸を行なう方法は特開昭49-81472号公報に記載されているが好ましい電極の形態には言及しておらず、又特に繊維層の厚いシート状物の含浸法に於ける加熱効果を期待する示唆はない。

#### 〔実施例〕

以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明する。

成形板の物性測定は次の方法で行った。

曲げ強度、曲げ弾性率：ASTM-D790-84A

ILBB：ASTM-D2334-84

VE：アルキメデス法

#### 実施例1

(1) 第1図に示された含浸設備に於いて樹脂フ

に導く。その後トップフィルム(17)で被覆された後に本発明の凹凸のあるプレスロー(18-1～18-3)で加圧含浸を行ない、一旦剥離紙を剥ぎ炭素繊維面を帯状電極(10)上に導く。この時、炭素繊維面はフィルム電極と接触初期部では発熱し高温状態にあるが、帯状電極面とともに移動し(電氣的接点は接触初期に集中する)、冷風機(N)による冷却によりロー(21)の点では十分に冷却され帯状電極面から離れた後再び剥離紙と重ね合わさつて剥離紙上に樹脂含浸されたシート状物を持つブリアブレッグが得られる。

電極の取り方としてはロー電極印加、帯状電極印加など特に限定するものではないが含浸後に接触させる電極は帯状電極であることが好ましい。

帯状電極を用いることにより、含浸されたシート状物(例えばブリアブレッグ)と電極との接触長を長くすることにより効果的な通電が可能でありブリアブレッグが電極と剥離する点に於てブリア

フィルム(1)として剥離紙上に106g/m<sup>2</sup>の樹脂を塗布した巾50cmの樹脂フィルムを用いシート状物として直径8μの炭素繊維フィラメントを12000本集束した炭素繊維トウを50cm巾中に150本並列に並べた一方向シート(240g/m<sup>2</sup>)、剥離フィルムとして厚さ20μのポリプロピレンフィルムを積層し表面温度が130℃に加熱された加熱ロー(4)上に供給した。

本実施例で用いたプレスローはプレスロー(5-1)であり、凹凸パターンは第2図に示される変形とし凸部変形の短径が3mm、長径6mm、凹部溝巾0.9mm、深さ0.8mm(凸部面積比約45%)のゴム硬度80度、外径125mmのシリコンゴムロー、プレスロー(5-2)は外径125mmの金属ロー上にピッチ1mmで周方向に深さ0.7mmの溝を有する筋ロー、プレスロー(5-3)は外径125mmの平滑なローを用いて圧力30kg/cm<sup>2</sup>炭素繊維シートの移動速度(以後含浸速度)

15 m / 分で樹脂含浸を行なつたが未含浸部及び炭素繊維の配向乱れは存在せず、高品質の炭素繊維—方向グリアレグが得られた。

## (2) 比較例

(1) に於て用いたプレスロールを全て平滑なロール(5-1、5-2及び5-3)とした以外は全て(1)と同一の条件により含浸を試みた。その結果、樹脂の絞り出しと樹脂流れに伴う繊維の配向乱れ、未含浸部の存在のため使用に耐えるグリアレグは得られず使用可能なグリアレグを得るためには、プレスロール(5-1、5-2、5-3)の圧力を下げ(およそ0.5 kg/cm)かつ含浸速度を0.2 m / 分にまで低下せしめる必要があり高速の樹脂含浸は不可能であつた。

## 実施例 2

直径8  $\mu$  の炭素繊維を集束して得た無撚の3Kの糸束を経糸及び緯糸に使用し、200 g / m<sup>2</sup>平織クロスを得た。このクロスに200 g / m<sup>2</sup>の目付を有するエポキシ樹脂フィルムを重ね

m / 分近傍であり、本発明の方法を採用することにより著しく含浸速度を向上せしめることができた。

## 実施例 3

実施例1と同じ製造条件でプレスロール5-1(変形パターン)を1本だけ用いロール含浸を行なつた。得られたグリアレグシートは全体に未含浸部が規則的に残つていたため、これを用いて脱気なしでの積層を行ない物性測定を行なつた。結果は次のとおりであり、従来法により得たグリアレグを脱気して積層して得たものとの間に物性上の差はみられなかつた。

なお、物性評価用積層板の成形条件は、グリアレグシート積層板を加熱90℃、真空1 kg/cm<sup>2</sup>、30分間の予備加熱、真空1 kg/cm<sup>2</sup>、次いで130℃、加圧5 kg/cm<sup>2</sup>、60分間のオートクレーブ成型して測定に供した。

実施例1と同様な方法でパターンプレス含浸を行なつた。但し、パターンロール上の凸部の形状は実施例1と同様であるが凹部の面積は実施例1より大きく、本実施例での凸部面積比32%のものを用いた。

含浸は次の様にして行なわれた。

200 g / m<sup>2</sup>の炭素繊維クロスと剥離紙上に塗布された200 g / m<sup>2</sup>の樹脂フィルムを重ね合せ、130℃に加熱された回転ドラム上に導き、樹脂温度が110℃まで升温した位置で第一の凹凸のあるロール(5-1)(直径125 mmのパターンロール)次いでその直後に置かれたピッチ1 mmの溝ロール次いで平滑なロールでそれぞれ含浸を行なつた。

この時の含浸速度は10 m / 分であり、得られた炭素繊維グリアレグは完全に樹脂含浸が行なわれていた。

従来この種のクロスの含浸は樹脂の絞り出しを防止のためフラットプレス又は低圧力のローラー含浸が利用されるが、その含浸速度は0.3

|       | 本発明の方法による<br>グリアレグ<br>脱気なし | 従来法によるグリアレグ<br>脱気(従来法) |
|-------|----------------------------|------------------------|
| 曲げ強度  | 181 kg/cm <sup>2</sup>     | 180 kg/cm <sup>2</sup> |
| 曲げ弾性率 | 130 T/cm <sup>2</sup>      | 132 T/cm <sup>2</sup>  |
| ILBS  | 9.8 kg/cm <sup>2</sup>     | 9.7 kg/cm <sup>2</sup> |
| VF    | 58%                        | 57%                    |

## 実施例 4

12K(炭素繊維12000本)のオフドゥを50 cmの巾中に150本並列に送り出し、シート状となし、ロール電極を通過することにより、電圧印加し、次いで剥離紙上に50 cm巾に106 g / m<sup>2</sup>の目付で塗布された樹脂フィルム上に誘導したのち凹凸のあるプレスロールにてプレス圧力30 kg/cmを加えて含浸させた。この時のプレスパターンの形状は実施例1と同じのものを用いた。このプレスパターンロールの直後で第7図に示す様に再び電極に接触した。但し、この時張力発生ロールを加熱し90℃とした。

電極間距離は25 mm、内オフドゥと樹脂シ-

ト一体部は1.5mであり、この時電圧50V、電流140A、CF温度は120℃であつた。

なお、含浸速度(シート状物の移動速度)は10m/分であつた。

電極設定の簡略図を第7図に示した。この時、繊維層への含浸性及び実施例3と同様の条件で成型した成型物の物性は次の通りであつた。

|       |                         |        |
|-------|-------------------------|--------|
| 含浸性   | 良好                      | 未含浸部なし |
| 曲げ強度  | 180 kg/cm <sup>2</sup>  |        |
| 曲げ弾性率 | 13.0 T/cm <sup>2</sup>  |        |
| ILBB  | 11.5 kg/cm <sup>2</sup> |        |
| VF    | 60%                     |        |

#### 実施例5及び比較例

12K(炭素繊維12000本)のCFトウを50cm巾中に300本並列に送り出し、シート状となし、これを巾50cm樹脂目付200g/m<sup>2</sup>に樹脂が塗布された剥離紙上に誘導した。CFトウが樹脂シートに接するまえにロール電極を通過することにより電圧印加し、さらに樹脂シートと一体化した後、実施例1で用いたも

のと同じパターンプレスロールを用いて含浸させた直後で再び電極に接触した。この時のプレス圧力は30kg/cmとした。なお供給速度は5m/分とした。

電極間距離、電圧、電流はそれぞれ2m、50V、260Aであり、CF温度は120℃であつた。また、張力発生ロールも加熱し120℃とした。

繊維への樹脂含浸性及び実施例3と同様の条件で成型した成型物の物性は次のとおりであつた。

|       |                         |        |
|-------|-------------------------|--------|
| 含浸性   | 良好                      | 未含浸部なし |
| 曲げ強度  | 182 kg/cm <sup>2</sup>  |        |
| 曲げ弾性率 | 12.0 T/cm <sup>2</sup>  |        |
| ILBB  | 11.6 kg/cm <sup>2</sup> |        |
| VF    | 60%                     |        |

なお、実施例5と同様の条件で但しCFトウへの電圧印加は行なわず張力発生ロールを130℃に加熱し、上記実施例5と同じ条件で含浸を行なつた。

含浸性：不良、未含浸部が全表面積の40%程度

物性：含浸不良のため測定せず

#### く発明の効果>

本発明によれば、凹凸のあるプレスロールを用いることにより含浸時の樹脂の絞り出しがなく高速でのアブリゲ生産が可能となり、また脱気不要のアブリゲシートの作成も可能となる。さらに、炭素繊維については通電発熱法を併用することにより従来法では困難であつた厚手アブリゲシートの生産が可能となる。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の特定の凹凸パターンを有するプレスロールを用いる樹脂含浸法を示す模式図、第2～4図は本発明で用いられる特定のパターンを例示するための平面図及び断面図、第5図は本発明の凹凸のあるプレスロールによる含浸過程を説明するための模式図、第6図は含浸が良好となる場合の適切な凸部面積とアブリゲ中樹脂含量の関係を示すグラフ、第7図は

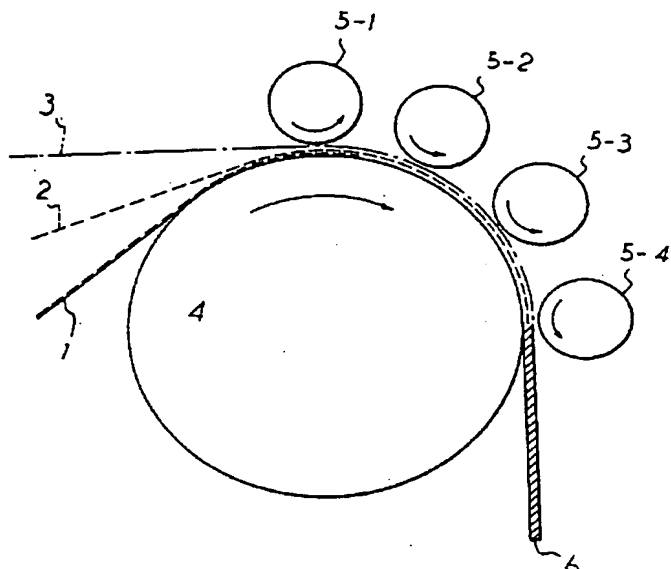
通電加熱含浸法を行なう場合の工程の一例を示す工程図、第8図は従来のロールプレス含浸法を説明するための参考図である。

- 1：樹脂フィルム(剥離紙上に樹脂を塗つたもの)
- 2：シート状物
- 3：トップフィルム
- 4：加熱ロール
- 5：プレスロール
- 6：アブリゲ(樹脂含浸されたシート状物)
- 7：シート状物
- 8：樹脂
- 9：凹凸のあるプレスロールの凸部
- 10：電源
- 11：シート状物
- 12：樹脂フィルム
- 13：樹脂フィルム送り出しロール
- 14：フリーロール
- 15：張力発生ロール
- 16：トップフィルム送り出しロール



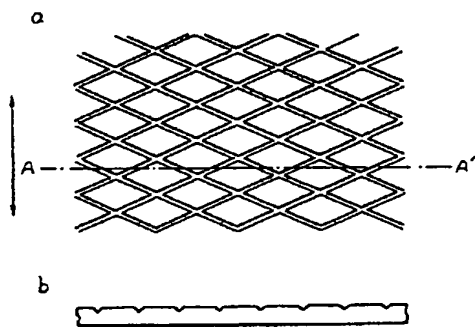
- 17 : トップフィルム  
 18 : プレスロール  
 19 ~ 23 : フリーロール  
 24 : 剥離紙  
 25 : 樹脂フィルム  
 26 : シート状物  
 27 : 加熱ロール  
 28 : プレスロール  
 29 : プリプレグ  
 I : ロール電極 (入側)  
 II : ロール電極 (出側)  
 III : 帯状電極  
 N : 冷風送風機

第1図

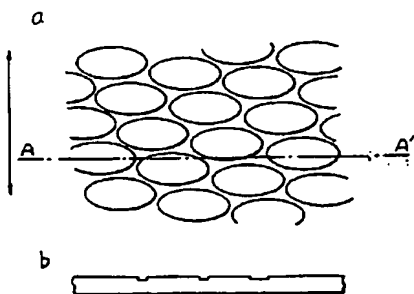


代理人 吉澤敏夫

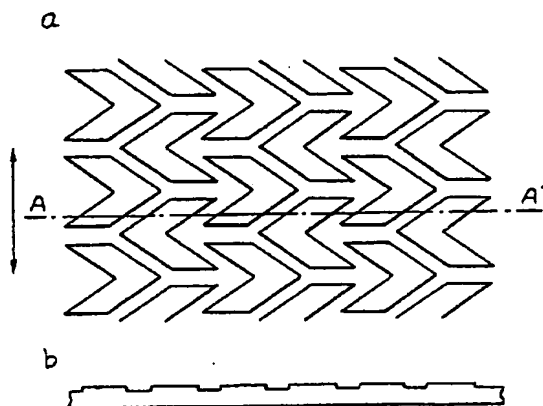
第2図



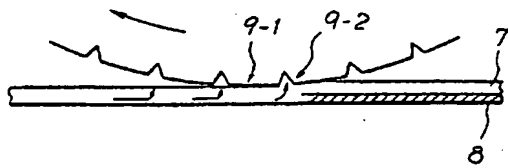
第3図



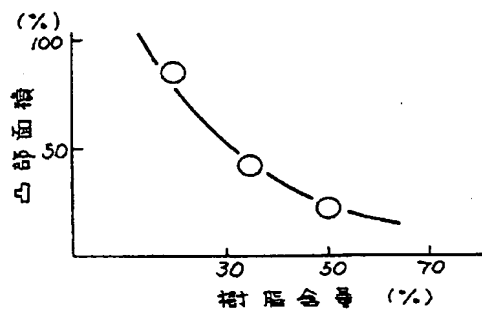
第4図



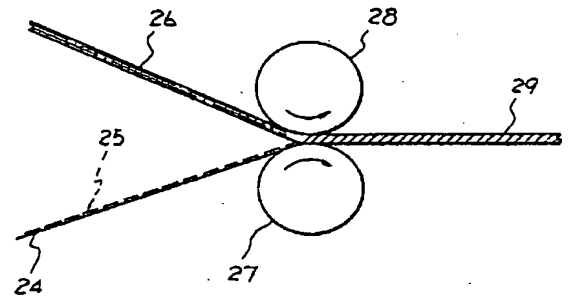
第 5 図



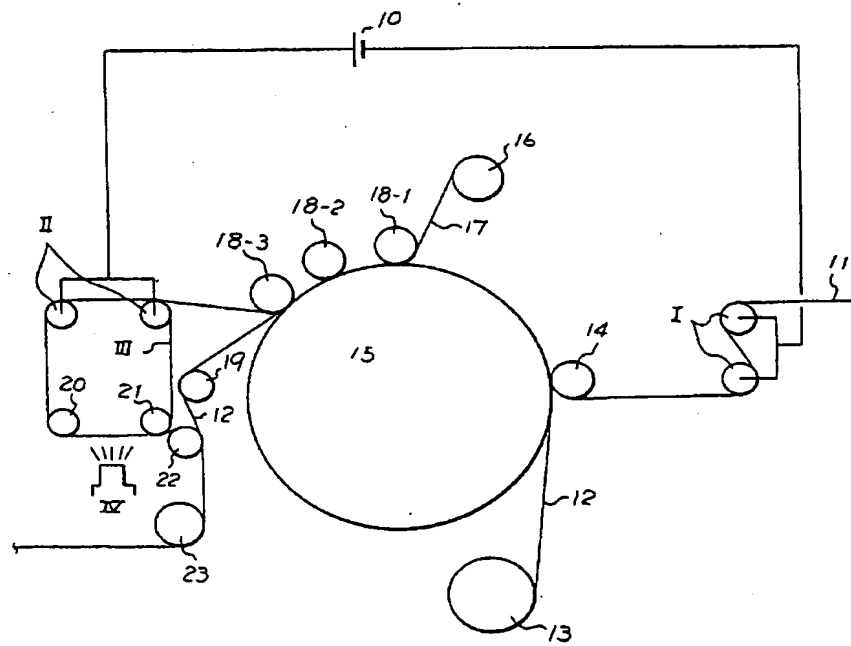
第 6 図



第 8 図



第 7 図



【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第2部門第4区分  
 【発行日】平成8年(1996)7月9日

【公開番号】特開平1-200914  
 【公開日】平成1年(1989)8月14日  
 【年通号数】公開特許公報1-2010  
 【出願番号】特願昭63-255388  
 【国際特許分類第6版】

B29B 15/12 9350-4F  
 C08J 5/24 7310-4F

手続補正書

平成8年 9月 29日

特許庁長官 殿

1. 事件の表示

昭和63年特許第255388号

2. 発明の名称

樹脂の含浸法

3. 補正をするもの

事件との関係 特許出願人

住 所 東京都中央区京橋二丁目3番19号

名 称 (608) 三菱レイヨン株式会社

代表者 田口 栄一

4. 補正命令の日付

自発

5. 補正の対象

明細書の特許請求の範囲および明細書の発明の詳細な説明の欄

6. 補正の内容

(1) 明細書の特許請求の範囲

別紙の通り。

(2) 明細書第5頁第12行と第13行の間に以下を挿入する。

「 前述したフラットなプレスロールの他にも、特開昭47-8850号公報、特開昭57-195619号公報、特開昭58-131028号公報において、樹脂含浸布、シートモールドコンパウンドの製造にプレスロールの軸方向の溝付きロール、プレスロールの周方向の溝付きロールを用いる技術がそれぞれ開示されている。前者のロールでは、その押圧部形状から明らかなようにフラットロールとさほど含浸効果は変わらず、ただ一本の溝付きロールで含浸した場合においては、かえって長手方向の樹脂含有量が溝ピッチ程度の長さで変動して採用できない。また、後者二種のロールでは、シートモールドコンパウンドのようにランダム材では気泡を除去する効果を発揮するものの、トウ状物の引き揃えシートに対しては、巾方向に生ずる樹脂流れのためトウ間に隙間ができる不具合が発生し、織物材に対しても同じ樹脂流れのためトウの蛇行、目崩れが生じ流布具合が発生することが判明している。」

(3) 明細書の第6頁第3行目の「特定の」を「直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する」に補正する。

(4) 明細書の第6頁第6行目の「特定の」を「直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する」に補正する。

(5) 明細書の第6頁第17行目の「特定の」を「直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する」に補正する。

(6) 明細書の第7頁第5行目の「特定の」を「直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する」に補正する。

(7) 明細書の第7頁第11行目～第13行目の「その結果、最も好ましい凹凸パターンは直線、曲線或いはその両者によって囲まれた凸部の領域を持つパターンであるとの結果を得るに至った。」を「その結果、本発明の目的を達成するためには、直線、曲線或いはその両者によって囲まれた凸部の領域を持つパターンのプレスロールが必要であるとの結果を得るに至った。」

(8) 明細書の第8頁第11行目～第19行目の「特開昭57-195619号(特公昭59-10285号)公報に記載のプリブレグシートの製造方法に於いて、」を「特開昭57-195619号(特公昭58-10295号)公報、特開昭58-131028号公報に記載のプリブレグシートの製造方法に於いて、」に補正する。

(9) 明細書の第10頁第4行目の「例えば」を「例えば、特開昭47-9850号公報に記載の」に補正する。

(10) 明細書の第12頁第8行目の「特定の」を「直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する」に補正する。

別紙

## 2. 特許請求の範囲

1. 樹脂層上にシート状物を重ね次いで該樹脂層をシート状物中に含浸せしめるロール含浸法に於いて、直線、曲線又はその両者によって囲まれた凸部領域を有する凹凸パターンを有するプレスロールを用いることを特徴とする樹脂の含浸法。
2. 凸部領域の面積がプレスロール表面積の20～90%である請求項1記載の含浸法。
3. 1本以上の凹凸パターンプレスロールを、凹凸パターンプレスロールのみ、もしくは従来のプレスロールと併用して含浸を行うことを特徴とする請求項1記載の含浸法。
4. シート状物がトウ状物の引き揃えシートであることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
5. シート状物が織物であることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
6. シート状物が炭素繊維から成ることを特徴とする請求項1記載の含浸法。
7. 樹脂の含浸に際し炭素繊維から成るシート状物に通電加熱せしめることにより樹脂流動化とシート状物の昇温を促進せしめることを特徴とする請求項6記載の含浸法。

以上